

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

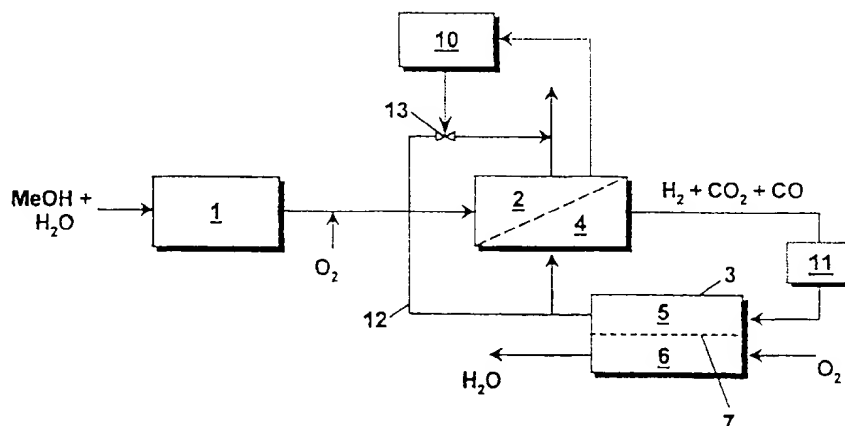
(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> : H01M 8/06, 8/04, C10K 3/04, C01B 3/50	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/04600 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 27. Januar 2000 (27.01.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/04353 (22) Internationales Anmeldedatum: 23. Juni 1999 (23.06.99) (30) Prioritätsdaten: 198 32 389.1 18. Juli 1998 (18.07.98) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): DBB FUEL CELL ENGINES GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG [DE/DE]; Neue Strasse 95, D-73230 Kirchheim (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): STROBEL, Barbara [DE/DE]; Lindenstrasse 29, D-89160 Dornstadt (DE). LIPPERT, Marco [DE/DE]; Silheimerweg 1, D-89346 Bibertal-Bühl (DE). HASSERT, Alexandra [DE/DE]; Uhländstrasse 15, D-73117 Wangen (DE). SCHÜSSLER, Martin [DE/DE]; Hämpfergasse 18, D-89073 Ulm (DE). (74) Anwälte: KOCHER, Klaus-Peter usw.; DaimlerChrysler AG, Intellectual Property Management, FIP - C 106, D-70546 Stuttgart (DE).	(81) Bestimmungsstaaten: JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.	

(54) Title: FUEL CELL SYSTEM

(54) Bezeichnung: BRENNSTOFFZELLENSYSTEM

(57) Abstract

The invention relates to a fuel cell system comprising a fuel cell (3) having a cathode region (6), an anode region (7) and a polymer electrolyte membrane (7). A gas containing oxygen is supplied to the cathode region and a gas containing hydrogen to the anode region. The system also comprises a gas generating device (1) in which a hydrogen-rich reformat containing carbon monoxide is produced from a fuel by means of steam reforming and/or partial oxidation. The system further has a gas purification step (2) in which the carbon monoxide contained in the reformat is selectively oxidized on a suitable catalyst with addition of oxygen, and a heat exchanger (4) for the dissipation of thermal energy which is positioned in the gas purification stage and through which a coolant circulates. According to the invention, the anode and/or cathode gas escaping from the fuel cell and/or an educt gas present in the fuel cell system circulates in the heat exchanger for the dissipation of the thermal energy.



(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein Brennstoffzellensystem mit einer Brennstoffzelle (3), die einen Kathoden- (6), einen Anodenraum (5) und eine dazwischenliegende Polymerelektrolytmembran (7) aufweist, wobei dem Kathodenraum ein sauerstoffhaltiges Gas und dem Anodenraum ein wasserstoffhaltiges Gas zugeführt wird, einer Gaserzeugungsvorrichtung (1), in der aus einem Brennstoff mit Hilfe der Wasserdampfreformierung und/oder partiellen Oxidation ein wasserstoffreiches, Kohlenmonoxid enthaltendes Reformat hergestellt wird, einer Gasreinigungsstufe (2), in der das Kohlenmonoxid im Reformat unter Zugabe von Sauerstoff an einem geeigneten Katalysator selektiv oxidiert wird, und einem in der Gasreinigungsstufe angeordneten und von einem Kühlmedium durchströmten Wärmetauscher (4) zur Abfuhr thermischer Energie. Erfindungsgemäß wird der Wärmetauscher zur Abfuhr der thermischen Energie von dem aus der Brennstoffzelle austretenden Anoden- und/oder Kathodenabgas und/oder einem im Brennstoffzellensystem vorhandenen Eduktgas durchströmt.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

### Brennstoffzellensystem

Die Erfindung betrifft ein Brennstoffzellensystem gemäß dem Oberbegriff des Patentanspruchs 1.

Bei der Erzeugung eines wasserstoffreichen Gases aus einem Rohkraftstoff für den Betrieb von Brennstoffzellen entsteht ein Produktgas mit einem Anteil an Kohlenmonoxid von einigen Prozent. Bei der Wasserdampfreformierung von Methanol hat das dabei entstehende Reformat beispielsweise eine Temperatur von etwa 300° C. Vor dem Eintritt in die Brennstoffzelle muß die Kohlenmonoxidkonzentration auf ungefähr 10 ppm verringert und das Reformat auf die Betriebstemperatur der Brennstoffzelle, üblicherweise im Bereich von ungefähr 80° C abgekühlt werden. Hierzu wird bei herkömmlichen Brennstoffzellensystemen zwischen der Gaserzeugungsvorrichtung und der Brennstoffzelle eine Gasreinigungsstufe vorgesehen. Weiterhin werden zwischen der Gaserzeugungsvorrichtung und der Gasreinigung beziehungsweise zwischen der Gasreinigungsstufe und der Brennstoffzelle Reformatkühler vorgesehen.

Aus der EP 0 743 694 A1 ist ein Brennstoffzellensystem bekannt, bei dem mit Hilfe eines Reformers aus einem Methanol/Wassergemisch ein wasserstoffreiches, Kohlenmonoxid enthaltendes Gas erzeugt wird. Anschließend wird in einer Gasreinigungsstufe das Kohlenmonoxid unter Zugabe von Sauerstoff mit Hilfe der selektiven Oxidation aus dem Reformat entfernt. Zur Kühlung der Gasreinigungsstufe ist ein Wärmetauscher vorgesehen, der von Wasser oder Öl durchströmt wird. Zur Kühlung des

Kühlmediums ist ein weiterer Flüssigkeits/Luftwärmetauscher vorgesehen.

Weiterhin ist aus der US 52 71 916 A1 eine zweistufige Vorrichtung zur selektiven Oxidation von Kohlenmonoxid in einem wasserstoffreichen Gasgemisch bekannt. Diese Gasreinigungsstufe weist ebenfalls einen Wärmetauscher auf, der vorzugsweise von einem flüssigen Kühlmedium mit einem Siedepunkt zwischen 160° und 175° C durchströmt wird. Vor dem Eintritt in eine nachgeschaltete Brennstoffzelle wird das Gasgemisch in einem weiteren von Wasser durchströmten Wärmetauscher auf die erforderliche Brennstoffzellentemperatur gekühlt.

Schließlich ist aus der WO 93/19005 A1 ein gattungsbildendes Brennstoffzellensystem bekannt. Bei dieser Vorrichtung wird in einem wasserstoffreichen Gasgemisch enthaltenes Kohlenmonoxid in einer zweistufigen Gasreinigungsstufe unter Zugabe von Sauerstoff selektiv oxidiert. In beiden Gasreinigungsstufen sind von einer Flüssigkeit durchströmte Wärmetauscher vorgesehen. Zusätzlich ist zwischen den beiden Stufen ein weiterer Wärmetauscher vorgesehen.

Es ist die Aufgabe der Erfindung, ein kompaktes, kostengünstig herstellbares und hinsichtlich der Kühlung der Gasreinigungsstufe verbessertes Brennstoffzellensystem zu schaffen.

Diese Aufgabe wird durch eine Vorrichtung mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst

Durch die Ausgestaltung der Gasreinigungsstufe als Gas-Gas-Wärmetauscher und die Verwendung des Anoden- und/oder Kathodenabgas der Brennstoffzelle und/oder eines im Brennstoffzellensystem vorhandenen Eduktgases als Kühlmedium wird eine vereinfachte Vorrichtung geschaffen, da kein zusätzlicher Kühlmittelkreislauf mit zugehörigem

Flüssigkeits/Luftwärmetauscher benötigt wird. Dadurch verringert sich der benötigte Bauraum und die Kosten der Vorrichtung.

Der naturgemäß schlechtere Wärmedurchgang bei Gas-Gas-Wärmetauschern verhindert außerdem eine zu starke Ankopplung an das Kühlmedium. Dadurch kann verhindert werden, daß die Reaktion in der letzten Gasreinigungsstufe zu stark gekühlt wird und somit keine Oxidation mehr stattfinden kann, weil der Bedeckungsgrad des Katalysators mit Kohlenmonoxid zu hoch wird.

Weiterhin ist der Enthalpiestrom auf der Kühlseite, also im Anoden- und/oder Kathodenabgas, lastabhängig, so daß entsprechend der entstehenden Reaktionswärme bei der selektiven Oxidation bei großer Last mehr, bei kleiner Last weniger Energie abgeführt wird. Außerdem verbessert sich der Gesamtwirkungsgrad des Systems, falls das Anodenbeziehungsweise Kathodenabgas einem nachgeschalteten katalytischen Brenner zugeführt wird, da das Anodenbeziehungsweise Kathodenabgas beim Durchströmen des Wärmetauschers vorgewärmt wird. Diese Energie muß dann anschließend im katalytischen Brenner nicht mehr zugeführt werden. Insgesamt geht dem Gesamtsystem durch die Kühlung der Gasreinigungsstufe keine thermische Energie verloren.

Weiterhin kann bei dem erfindungsgemäßen Brennstoffzellensystem unter anderem auf zusätzliche Reformatkühler zwischen Gasreinigungsstufe und Brennstoffzelle und/oder zwischen Gaserzeugungsvorrichtung und Gasreinigungsstufe verzichtet werden, da das Kühlmedium im wesentlichen die Betriebstemperatur der Brennstoffzelle aufweist. Dadurch werden mehrere Funktionen in einem Bauteil vereint, wodurch zum einen weniger Zu- und Ableitungen benötigt werden und zum anderen Gewicht- und Platzersparnisse und die damit einhergehende Kostenreduzierung realisiert werden können.

Durch die Kühlmittelstromvariation mit Hilfe einer Bypassleitung mit zugehörigem Bypassventil und Steuergerät ist es möglich, in der Dynamik eine möglichst konstante Temperaturverteilung im Reaktorbett einzustellen und somit bei jeder Last eine minimale CO-Ausgangskonzentration zu erreichen.

Weitere Vorteile und Ausgestaltungen der Erfindung gehen aus den Unteransprüchen und der Beschreibung hervor. Die Erfindung ist nachstehend anhand einer Zeichnung näher beschrieben, wobei

Fig. 1 die den prinzipiellen Aufbau eines erfindungsgemäßen Brennstoffzellensystems mit einem Wärmetauscher mit Bypassleitung und

Fig. 2 ein weiteres Ausführungsbeispiel mit einer mehrstufigen Gasreinigungsstufe und einem Wärmetauscher ohne Bypassleitung zeigt.

Das Brennstoffzellensystem gemäß Fig. 1 enthält eine Gaserzeugungsvorrichtung 1, eine Gasreinigungsstufe 2 und eine insgesamt mit 3 bezeichnete Brennstoffzelle. Die Brennstoffzelle 3 enthält einen Anodenraum 5 und einen Kathodenraum 6, die durch eine protonenleitende Membran 7 voneinander getrennt sind. In den Anodenraum 5 wird ein wasserstoffreiches Gas, in den Kathodenraum 6 Sauerstoff beziehungsweise Luft zugeführt. Die Membran 7 ist auf beiden Seiten mit einem geeigneten Katalysator versehen. Dadurch wird der Wasserstoff in der Anode oxidiert, wobei das verbleibende Proton durch die Membran zur Kathode wandern kann. Dort wird der Sauerstoff reduziert und verbindet sich mit dem Proton zu Wasserdampf. Bei dieser elektrochemischen Reaktion entsteht eine Spannung, die einer externen Last zugeführt werden kann.

In der Gaserzeugungsvorrichtung 1 wird aus einem Kraftstoff ein wasserstoffreiches Gas hergestellt. Hierbei handelt es

sich vorzugsweise um eine Vorrichtung zur Wasserdampfreformierung und/oder zur partiellen Oxidation. Als Kraftstoff kann beispielsweise Methanol, Benzin oder andere kohlenwasserstoffhaltigen Substanzen verwendet werden. Obwohl das Ausführungsbeispiel anhand der Wasserdampfreformierung von Methanol beschrieben wird, soll der Schutzbereich nicht auf diese Anwendung beschränkt sein.

Bei der Wasserdampfreformierung wird ein Methanol/Wassergemisch an einem geeigneten Katalysator zu Wasserstoff und Kohlendioxid umgesetzt. Als Nebenprodukt entsteht zusätzlich Kohlenmonoxid. Das Methanol/Wassergemisch wird vorzugsweise in einer nicht dargestellten Verdampfeinheit vor dem Eintritt in die Gaserzeugungsvorrichtung verdampft und überhitzt. Bei der partiellen Oxidation wird zusätzlich Sauerstoff in den Gasstrom zugegeben.

Das im Gasgemisch enthaltene Kohlenmonoxid ist für die Brennstoffzelle 3 schädlich. Aus diesem Grunde wird zwischen der Gaserzeugungsvorrichtung 1 und der Brennstoffzelle 3 die Gasreinigungsstufe 2 angeordnet. Durch die Gasreinigungsstufe 2 wird der Kohlenmonoxidanteil im Gasgemisch auf Werte  $< 50$  ppm reduziert. Dabei wird das Kohlenmonoxid an einem geeigneten Katalysator, beispielsweise Platin und/oder Ruthenium auf einem Träger aus Zeolith oder Aluminiumoxid, unter Zugabe von Sauerstoff selektiv oxidiert. Der Sauerstoff kann hierbei, wie im Ausführungsbeispiel dargestellt, in geeigneter Menge vor der Gasreinigungsstufe 2 in das Gasgemisch zugegeben werden. Es ist jedoch auch möglich, den Sauerstoff an einer oder mehreren Stellen direkt in die Gasreinigungsstufe 2 zuzuführen.

Die maximal zulässige CO-Eingangskonzentration für die Gasreinigungsstufe 2 ist stark limitiert durch die daraus resultierende adiabate Temperaturerhöhung. Da das Lambda,

also das Verhältnis von Sauerstoff zu Kohlenmonoxid nicht zu klein sein darf, wird zusätzlich zum Kohlenmonoxid immer auch ein gewisser Anteil an Wasserstoff oxidiert. Die dabei frei werdende Energie trägt auch mit zur adiabaten Temperaturerhöhung bei. Wird die Gasreinigungsstufe 2 nicht aktiv gekühlt, so steigt die Temperatur schnell an und der Prozeß läuft auf einem zu hohen Temperaturniveau ab. Dies hat zur Folge, daß mit zunehmender CO-Eingangskonzentration mehr Wasserstoff und weniger Kohlenmonoxid oxidiert wird. Die Temperatur muß sich also in einem vorgegebenen Bereich bewegen. Durch teilweise Abfuhr der Reaktionswärme wird das Temperaturmaximum verringert, so daß eine Oxidation von höheren CO-Eingangskonzentrationen möglich wird. Durch die Temperaturkontrolle werden Umsatz und Selektivität erhöht, während die CO-Neubildung durch Annäherung an das Wasser-Gas-Shift-Gleichgewicht verringert wird.

Erfindungsgemäß wird als gasförmiges Kühlmedium das Anoden- und/oder Kathodenabgas oder Teilströme hiervon verwendet. Weiterhin können auch andere Gasströme, beispielsweise ein im Brennstoffzellensystem vorhandenes Eduktgas verwendet werden. Im den dargestellten Ausführungsbeispielen wird die Gasreinigungsstufe 2 beispielsweise vom Anodenabgas durchströmt. Die Verwendung insbesondere des Anoden- und/oder Kathodenabgas als Kühlmedium weist sehr viele Vorteile auf. Zum einen braucht kein zusätzliches Kühlsystem beziehungsweise ein zusätzliches Kühlmedium vorgesehen werden, wodurch sich das Gesamtsystem wesentlich vereinfacht. Gas-Gas-Wärmetauscher sind verfügbare Bauteile, die keine aufwendige Konstruktion erforderlich machen und daher fertigungstechnisch kostengünstig zu realisieren sind. Selbstverständlich können erfindungsgemäß jedoch auch aufwendiger ausgeführte Gas-Gas-Wärmetauscher verwendet werden. Zum einen verhindert der naturgemäß schlechtere Wärmedurchgang bei Gas-Gas-Wärmetauschern eine zu starke Ankopplung der Reaktion an das Kühlmedium. Dadurch kann verhindert werden, daß die Reaktion zu stark gekühlt wird und dadurch keine Oxidation mehr stattfinden



kann, da der Bedeckungsgrad des Katalysators mit Kohlenmonoxid zu hoch wird.

Weiterhin ist der Entalpiestrom auf der Kühlseite des Gas-Gas-Wärmetauschers lastabhängig, so daß ganz entsprechend der entstehenden Reaktionswärme bei der CO-Oxidation bei hoher Last mehr, bei geringer Last weniger Wärme abgeführt wird. Schließlich kann durch die resultierende Vorwärmung des Anoden und/oder Kathodenabgases der Gesamtwirkungsgrad des Systems erhöht werden, da diese Energie bei einer üblicherweise nachgeschalteten vollständigen katalytischen Oxidation des Anoden- und/oder Kathodenabgases nicht mehr erzeugt werden muß.

Zwischen der Gasreinigungsstufe 2 und der Brennstoffzelle 3 kann optional eine Entwässerungseinheit 11 zur Abscheidung von kondensierendem Wasser angeordnet werden. Weiterhin kann parallel zum Wärmetauscher 4 eine Bypassleitung 12 mit zugehörigem Bypassventil 13 vorgesehen werden. Hierbei kann das Bypassventil 13 an einer beliebigen Stelle in der Bypassleitung 12 angeordnet werden. Zur Ansteuerung des Bypassventils 13 ist außerdem ein Steuergerät 10 vorgesehen. In dem Steuergerät kann der gewünschte Bypassvolumenstrom anhand vorgegebener Kennfeldwerte und/oder in Abhängigkeit von der Temperatur im Kühlmedium und/oder im Reformat ermittelt und mit Hilfe einer Steuerung oder Regelung des Bypassventils 13 eingestellt werden. Die Temperatur des Kühlmediums oder des Reformatgasstromes wird an einer geeigneten Stelle in der Gasreinigungsstufe 2, dem Wärmetauscher 4 und/oder den zugehörigen Zu- beziehungsweise Ableitungen gemessen und dem Steuergerät zur Verfügung gestellt.

Wie bereits weiter oben ausgeführt sind Gas-Gas-Wärmetauscher bekannt, so daß auf Einzelheiten des Aufbaus hier nicht weiter eingegangen zu werden braucht. Vorzugsweise ist der Wärmetauscher durch eine Plattenanordnung realisiert, wobei das Kühlmedium und der

Reformatgasstrom vorzugsweise im Gegenstrom geführt werden. Das für die selektive Oxidation in der Gasreinigungsstufe 2 notwendige Katalysatormaterial wird vorzugsweise als Beschichtung auf eine wärmeaustauschende Fläche im Wärmetauscher 4 aufgebracht, wobei die wärmeaustauschende Fläche ganz oder nur teilweise mit Katalysator beschichtet sein kann.

Fig. 2 zeigt ein weiteres Ausführungsbeispiel, wobei gegenüber Fig. 1 gleiche Teile mit gleichen Bezugszeichen gekennzeichnet sind. Abweichend von Fig. 1 weist die Gasreinigungsstufe gemäß Fig. 2 eine erste Stufe 2a und eine zweite Stufe 2b auf. Es ist jedoch auch möglich, weitere Stufen vorzusehen. Zur Kühlung der ersten Gasreinigungsstufe 2a kann diese von einem beliebigen Kühlmedium, beispielsweise einem Wärmeträgeröl, das über entsprechende Zu- und Ableitungen 8, 9 zu- beziehungsweise abgeführt wird, durchströmt werden.

Der Sauerstoff kann hierbei, wie im Ausführungsbeispiel dargestellt, jeweils in geeigneter Menge vor der jeweiligen Stufe 2a, 2b in das Gasgemisch zugegeben werden. Es ist jedoch auch möglich, den Sauerstoff an einer oder mehreren Stellen direkt in die Gasreinigungsstufen 2a, 2b zuzuführen. Im Unterschied zu Fig. 1 ist hier auch keine Bypassleitung und auch keine Entwässerungsvorrichtung vorgesehen. Es ist jedoch selbstverständlich möglich, die Merkmale aus den beiden Ausführungsbeispielen beliebig zu kombinieren. Neben der gezeigten Anordnung mit ölgekühlter ersten Gasreinigungsstufe 2a und gasgekühlter zweiter Gasreinigungsstufe 2b ist es auch möglich, alle Gasreinigungsstufen 2a, 2b mit Brennstoffzellenabgas zu kühlen. Entscheidend ist jedoch, daß die letzte Stufe der Gasreinigungsstufe 2b direkt mit dem Brennstoffzellenabgas gekühlt wird um das Reformat vor dem Eintritt in die Brennstoffzelle 3 auf die geeignete Betriebstemperatur zu bringen.

Patentansprüche

1. Brennstoffzellensystem mit
- einer Brennstoffzelle, die einen Kathoden, einen Anodenraum und eine dazwischenliegende Polymerelektrolytmembran aufweist, wobei dem Kathodenraum ein sauerstoffhaltiges Gas und dem Anodenraum ein wasserstoffhaltiges Gas zugeführt wird,
  - einer Gaserzeugungsvorrichtung, in der aus einem Brennstoff mit Hilfe der Wasserdampfreformierung und/oder partiellen Oxidation ein wasserstoffreiches, Kohlenmonoxid enthaltendes Reformat hergestellt wird,
  - einer Gasreinigungsstufe, in der das Kohlenmonoxid im Reformat unter Zugabe von Sauerstoff an einem geeigneten Katalysator selektiv oxidiert wird, und
  - einem in der Gasreinigungsstufe angeordneten und von einem Kühlmedium durchströmten Wärmetauscher zur Abfuhr thermischer Energie,

d a d u r c h   g e k e n n z e i c h n e t ,  
daß im gasgeköhlten Wärmetauscher (4) als Kühlmedium das aus der Brennstoffzelle (3) austretende Anoden- und/oder Kathodenabgas und/oder ein im Brennstoffzellensystem vorhandenes Eduktgas verwendet wird.

2. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 1,  
d a d u r c h   g e k e n n z e i c h n e t ,  
daß die Gasreinigungsstufe (2) mehrstufig ausgeführt ist und daß der gasgeköhlte Wärmetauscher (4) zumindest der letzten Gasreinigungsstufe (2b) zugeordnet ist.

3. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß parallel zum Wärmetauscher (4) eine Bypassleitung (12)  
für das Kühlmedium und ein zugehöriges Bypassventil (13)  
angeordnet ist.
4. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß ein Steuergerät (10) für die Ansteuerung des  
Bypassventils (13) anhand vorgegebener Kennfeldwerte  
und/oder in Abhängigkeit von einer Temperatur im Kühlmittel  
und/oder im Reformat vorgesehen ist.
5. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß eine wärmeaustauschende Fläche in der  
Gasreinigungsstufe (2) zumindest teilweise mit dem  
Katalysator zur selektiven Oxidation des Kohlenmonoxids  
beschichtet ist.
6. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß das Reformat und das Kühlmedium im Wärmetauscher (4) im  
Gegenstrom geführt sind.
7. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß stromab der Gasreinigungsstufe (2) eine Entwässerungs-  
einheit (11) zur Abscheidung kondensierenden Wassers  
angeordnet ist.

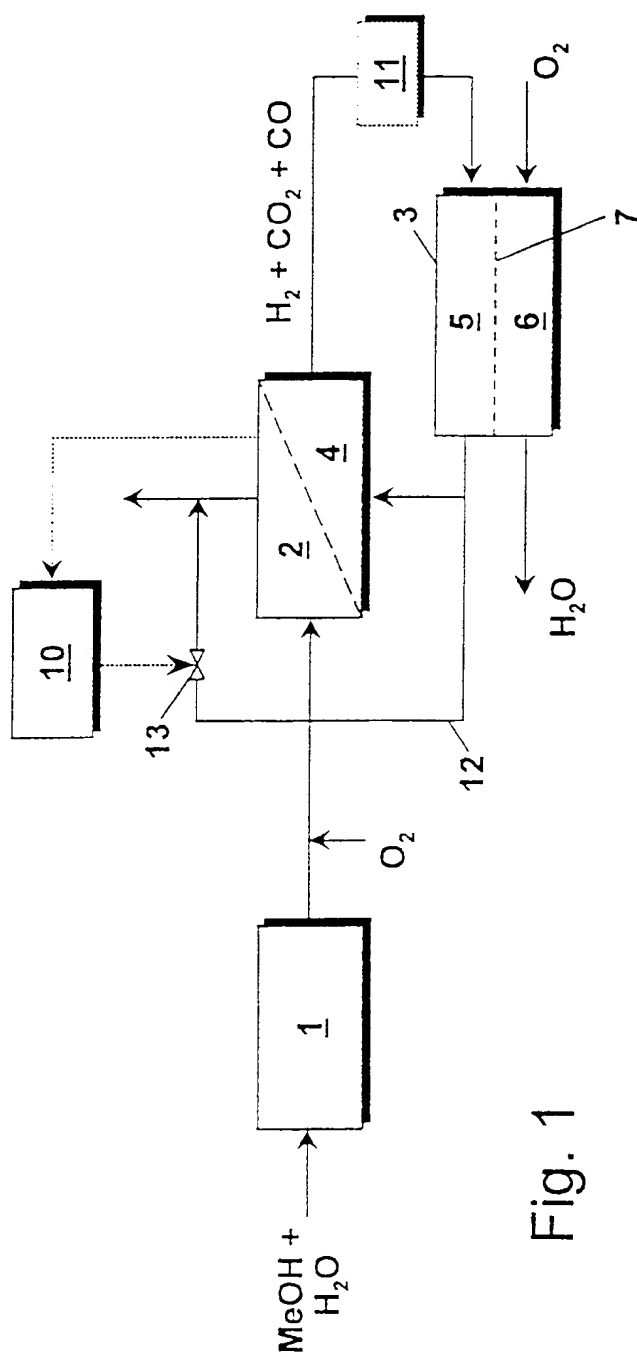


Fig. 1

2/2

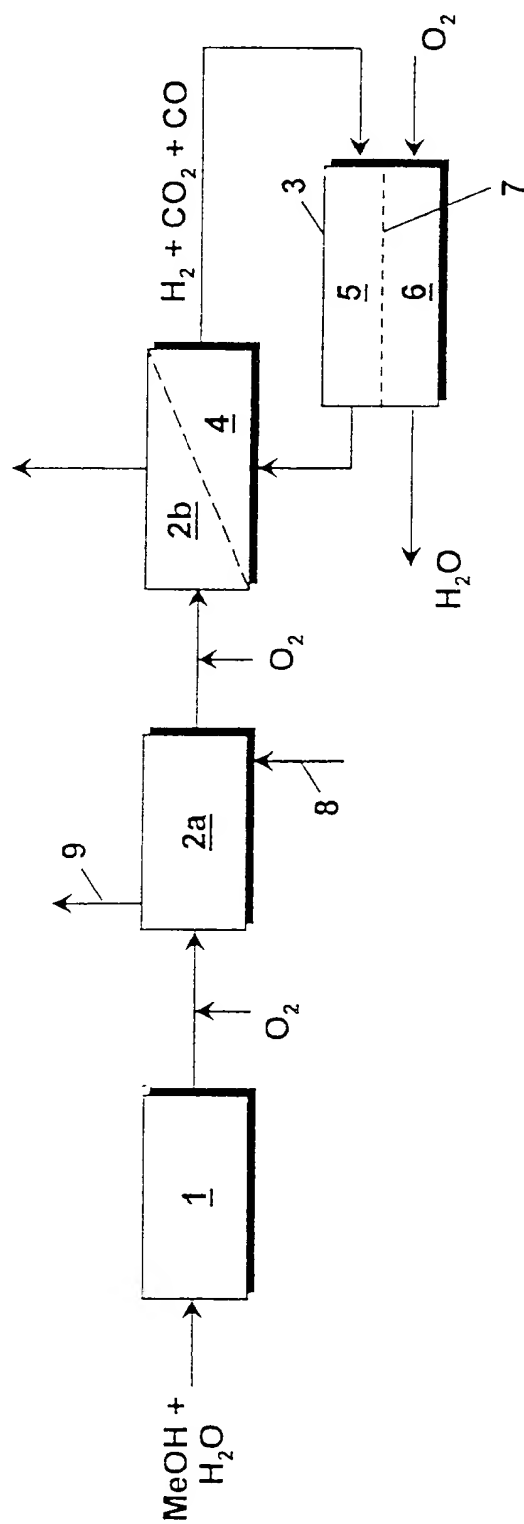


Fig. 2

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 99/04353

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M8/06 H01M8/04 C10K3/04 C01B3/50

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M C10K C01B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 130, no. 3, 18 January 1999 (1999-01-18) Columbus, Ohio, US; abstract no. 27205, HASHIZAKI, KATSUO ET AL: "Carbon monoxide removing apparatus, especially for reformed gas for polymer electrolyte fuel cells" XP002120510 abstract -& PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 199, no. 902, 26 February 1999 (1999-02-26) & JP 10 302824 A (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES), 13 November 1998 (1998-11-13) abstract & JP 10 302824 A (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD., JAPAN) 13 November 1998 (1998-11-13) -/--	1, 3, 4



Further documents are listed in the continuation of box C



Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 October 1999

Date of mailing of the international search report

08/11/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx 31 651 eoo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3015

Authorized officer

Gamez, A

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04353

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p style="text-align: center;">---</p> <p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 08, 30 August 1996 (1996-08-30) &amp; JP 08 106913 A (AISIN AW CO LTD; AQUEOUS RES:KK), 23 April 1996 (1996-04-23) abstract</p>	1,3,4
A	<p style="text-align: center;">----</p> <p>EP 0 834 948 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 8 April 1998 (1998-04-08) column 2, line 25 - line 37 column 3, line 22 - line 38 column 5, line 35 - line 51 column 8, line 41 - line 56 column 9, line 44 - line 57 column 17, line 16 - line 38</p>	1,3,4
A	<p style="text-align: center;">---</p> <p>EP 0 743 694 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 20 November 1996 (1996-11-20) cited in the application column 3, line 22 - line 28 column 4, line 55 - column 5, line 10 column 6, line 13 - line 24 column 26, line 22 - line 33</p>	1,3,4
A	<p style="text-align: center;">---</p> <p>WO 97 25752 A (INT FUEL CELLS CORP) 17 July 1997 (1997-07-17) page 2, line 21 - page 3, line 7 page 6, line 11 - line 17 page 6, line 28 - line 14 claims 1,2,4</p>	1,6
A	<p style="text-align: center;">---</p> <p>US 5 271 916 A (VANDERBORGH NICHOLAS E ET AL) 21 December 1993 (1993-12-21) cited in the application column 2, line 9 - line 37 column 4, line 19 - line 28 column 10, line 56 - column 11, line 37</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-4



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04353

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 08106913 A	23-04-1996	NONE	
EP 0834948 A	08-04-1998	JP 10101303 A	21-04-1998
EP 0743694 A	20-11-1996	JP 9030802 A	04-02-1997
		US 5843195 A	01-12-1998
WO 9725752 A	17-07-1997	US 5853674 A	29-12-1998
		CA 2215062 A	17-07-1997
		EP 0815605 A	07-01-1998
		JP 11502366 T	23-02-1999
US 5271916 A	21-12-1993	NONE	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04353

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 H01M8/06 H01M8/04 C10K3/04 C01B3/50

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M C10K C01B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 130, no. 3, 18. Januar 1999 (1999-01-18) Columbus, Ohio, US; abstract no. 27205, HASHIZAKI, KATSUO ET AL: "Carbon monoxide removing apparatus, especially for reformed gas for polymer electrolyte fuel cells" XP002120510 Zusammenfassung -& PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 199, no. 902, 26. Februar 1999 (1999-02-26) & JP 10 302824 A (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES), 13. November 1998 (1998-11-13) Zusammenfassung & JP 10 302824 A (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD., JAPAN) -/--	1, 3, 4

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. Oktober 1999

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

08/11/1999

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P B 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel: (+31-70) 340-2340, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Gamez, A

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

I nationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04353

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>13. November 1998 (1998-11-13)</p> <p>---</p> <p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN</p> <p>vol. 1996, no. 08,</p> <p>30. August 1996 (1996-08-30)</p> <p>&amp; JP 08 106913 A (AISIN AW CO LTD; AQUEOUS RES:KK), 23. April 1996 (1996-04-23)</p> <p>Zusammenfassung</p> <p>---</p>	1,3,4
A	<p>EP 0 834 948 A (TOYOTA MOTOR CO LTD)</p> <p>8. April 1998 (1998-04-08)</p> <p>Spalte 2, Zeile 25 - Zeile 37</p> <p>Spalte 3, Zeile 22 - Zeile 38</p> <p>Spalte 5, Zeile 35 - Zeile 51</p> <p>Spalte 8, Zeile 41 - Zeile 56</p> <p>Spalte 9, Zeile 44 - Zeile 57</p> <p>Spalte 17, Zeile 16 - Zeile 38</p> <p>---</p>	1,3,4
A	<p>EP 0 743 694 A (TOYOTA MOTOR CO LTD)</p> <p>20. November 1996 (1996-11-20)</p> <p>in der Anmeldung erwähnt</p> <p>Spalte 3, Zeile 22 - Zeile 28</p> <p>Spalte 4, Zeile 55 - Spalte 5, Zeile 10</p> <p>Spalte 6, Zeile 13 - Zeile 24</p> <p>Spalte 26, Zeile 22 - Zeile 33</p> <p>---</p>	1,3,4
A	<p>WO 97 25752 A (INT FUEL CELLS CORP)</p> <p>17. Juli 1997 (1997-07-17)</p> <p>Seite 2, Zeile 21 - Seite 3, Zeile 7</p> <p>Seite 6, Zeile 11 - Zeile 17</p> <p>Seite 6, Zeile 28 - Zeile 14</p> <p>Ansprüche 1,2,4</p> <p>---</p>	1,6
A	<p>US 5 271 916 A (VANDERBORGH NICHOLAS E ET AL)</p> <p>21. Dezember 1993 (1993-12-21)</p> <p>in der Anmeldung erwähnt</p> <p>Spalte 2, Zeile 9 - Zeile 37</p> <p>Spalte 4, Zeile 19 - Zeile 28</p> <p>Spalte 10, Zeile 56 - Spalte 11, Zeile 37</p> <p>-----</p>	1-4